

KINETIKA PEMBENTUKAN FASA HIDRIDA PADA ZIRCALOY-4 SELAMA PROSES GASEOUS HYDRIDING DENGAN PENDEKATAN PERSAMAAN AVRAMI

Hadi Suwarno dan Rohmad Sigit

*Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBBN) - BATAN
Kawasan Puspptek, Serpong 15314, Tangerang Selatan
E-mail: hadis@batan.go.id*

Diterima: 19 Oktober 2016

Diperbaiki: 20 Desember 2016

Disetujui: 5 Januari 2017

ABSTRAK

KINETIKA PEMBENTUKAN FASA HIDRIDA PADA ZIRCALOY-4 SELAMA PROSES GASEOUS HYDRIDING DENGAN PENDEKATAN PERSAMAAN AVRAMI. Sebagai salah satu paduan zirkonium, zircaloy-4 telah lama digunakan sebagai kelongsong bahan bakar nuklir. Interaksi zircaloy-4 dengan hidrogen baik selama operasi normal reaktor maupun kondisi transien akan mengakibatkan terjadinya degradasi sifat mekanik. Telah dilakukan analisis kinetika *hydriding* kelongsong Zircaloy-4 pada suhu 500 °C, 550 °C dan 600 °C dalam atmosfer hidrogen dengan metode AVRAMI untuk memperkirakan waktu pembentukan fasa hidrida yang rapuh dan observasi fisik kelongsong akibat interaksi kelongsong dengan hidrogen. Percobaan dilakukan dengan mereaksikan zircaloy-4 dengan hidrogen di sebuah alat *hydriding*. Analisis kinetika menunjukkan bahwa kecepatan reaksi *hydriding* mengikuti reaksi order dua dengan energi aktivasi 35 kJ/mol. Pembentukan fasa ϵ -ZrH, sebagai indikasi Zircaloy-4 mulai mengalami degradasi terbentuk dalam waktu 180 menit pada suhu 500 °C, 150 menit pada suhu 550 °C dan 100 menit pada suhu 600 °C. Penampakan visual zircaloy-4 pasca *hydriding* menunjukkan degradasi sifat mekanik seiring dengan kenaikan serapan hidrogen dan pembentukan fasa hidrida rapuh pada suhu yang lebih tinggi. Hal ini dikonfirmasi dengan kerusakan yang terlihat pada kelongsong pasca *hydriding*. Kelongsong mengalami penggelembungan pada suhu 550 °C dan menjadi hancur pada suhu 600 °C. Besarnya degradasi sifat mekanik akan ditentukan dengan uji mekanik lebih lanjut.

Kata kunci: Zircaloy-4, *Hydriding*, Kinetika, Hidrida, AVRAMI

ABSTRACT

HYDRIDE FORMATION KINETICS ON GASEOUS HYDRIDING OF ZIRCALOY-4 USING AVRAMI EQUATION. Zirconium alloys are mainly material for fuel cladding. Mechanical properties degradation of zircaloy-4 as nuclear fuel cladding is inevitable due to its interaction with hydrogen during normal reactor operation or transient condition. Kinetics analyses of Zircaloy-4 cladding materials at operating temperatures of 500, 550 and 600 °C under hydrogen atmosphere by using Avrami's method to simulate brittle hydride phase formation and physical observation of the cladding after hydriding have been performed in order to observe the cladding to hydrogen interaction. Kinetic analyses showed that hydriding reaction rate follows the second order with activation energy of 35 kJ/mol. The formation of ϵ -ZrH phase, an indication of the physical degradation of the tubes, consumed time of 180 minutes at a temperature of 500 °C, 150 minutes at 550 °C, and 100 minutes at 600 °C, respectively. Degradation mechanical properties could be seen visually on the higher hydriding temperature. The cladding materials showed that the tube swelling occurs at a temperature of 550 °C and the tube degraded into pieces occurs at 600 °C. The value of mechanical degradation will be determined by mechanical testing in the next research.

Keywords: Zircaloy-4, Kinetics, Hydriding, Hydride phase, AVRAMI

PENDAHULUAN

Zircaloy-4 (Zr-4) sebagai salah satu paduan zirkonium, telah digunakan sebagai kelongsong bahan bakar reaktor nuklir berpendingin air, tipe PWR maupun BWR, karena memiliki tampang lintang serapan neutron yang rendah, kekuatan mekanik yang baik, serta tahan terhadap korosi ketika dioperasikan di reaktor nuklir[1].

Selama reaktor beroperasi, Zr-4 selalu berinteraksi dengan hidrogen. Hidrogen bisa bersumber dari luar yaitu reaksi radiolisis pada pendingin primer yang berinteraksi langsung dengan kelongsong bahan bakar nuklir atau hidrogen yang sejak awal berada dalam kelongsong itu sendiri [2]. Selain itu, sumber hidrogen bisa disimulasikan melalui skenario kehilangan aliran pendingin pada teras reaktor. Pada skenario ini, reaksi eksotermis antara Zr-4 sebagai kelongsong dengan uap air yang timbul karena injeksi pendingin darurat kedalam teras reaktor. Gas hidrogen sebagian akan lepas ke atmosfer dan sebagian akan terdekomposisi menjadi atom hidrogen dan diserap oleh kelongsong bahan bakar nuklir [3]. Interaksi ini akan menyebabkan terjadi peristiwa *embrittlement* yang akan menurunkan sifat mekanik Zr-4 dan telah menjadi perhatian utama para peneliti sejak peristiwa Fukushima 11 Maret 2011 [4]. Adanya endapan hidrogen di dalam Zr-4 pada *burnup* yang tinggi merusak kekuatan Zr-4, khususnya dalam hal *tensile*, *ductility*, *ultimate strength*, dan *fracture toughness* pipa Zr-4 [5,6].

Serapan hidrogen dalam operasi normal sebuah reaktor nuklir sudah masuk dalam keselamatan desain. Dengan demikian fokus penelitian ini adalah untuk mengetahui karakteristik kinetika serapan hidrogen bahan kelongsong Zr-4 dalam lingkungan gas hidrogen pada kondisi diatas suhu operasi normal sebuah pembangkit listrik tenaga nuklir, yaitu pada rentang suhu 500-600 °C menggunakan alat uji hidriding. Hasilnya diformulasikan dengan persamaan Avrami yang biasa digunakan dalam reaksi kimia dan perubahan fasa untuk memberikan simulasi waktu pembentukan fasa hidrida penuh ZrH_2 (ϵ -hydride) selama proses hidriding, di mana kelongsong Zr-4 akan mengalami degradasi mekanik yang akan terlihat pada observasi fisik kelongsong Zr-4.

METODE PERCOBAAN

Penyiapan Spesimen

Zr-4 yang digunakan berasal dari Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBBN) BATAN dan memiliki diameter luar 10 mm dan tebal 0,5mm. Spesimen dipotong dengan panjang 10 mm. Hasil potong kemudian dicuci dengan asam nitrat konsentrasi 1N pada suhu 70 °C selama beberapa menit untuk menghilangkan kontaminan yang ada di permukaan pipa.

Tabel 1 menampilkan komposisi kimia Zr-4 yang ada di laboratorium Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir PTBBN dan dibandingkan dengan produk *Sandvik* dan *Westinghouse* [8]. Dari tabel tampak bahwa tidak ada

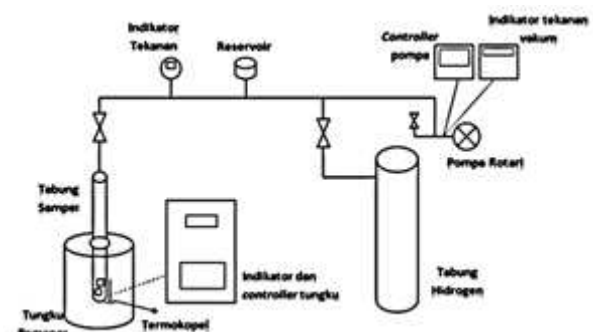
Tabel 1. Komposisi kimia Zr-4 berdasarkan uji XRF [7].

Elemen	Spesimen Uji (%)	<i>Sandvik</i> (%)	<i>Westinghouse</i> (%)
Zr	98,27	98,34	98,34
Sn	1,40	1,26	1,20
Fe	0,21	0,23	0,21
Cr	0,12	0,12	0,11

perbedaan yang signifikan dari ketiga produk tersebut, kecuali kadar Sn pada spesimen uji yang sedikit lebih tinggi. Hasil uji pra eksperimen menunjukkan bahwa Zr-4 memiliki toleransi komposisi kimia yang sangat ketat untuk memenuhi spesifikasi bahan struktur kelongsong bahan bakar nuklir.

Hidriding

Penelitian interaksi Zr-4 dengan gas hidrogen dilakukan di sebuah sistem hidriding yang dibuat dengan mengikuti prinsip Sievert (lihat Gambar 1). Prinsip dari sistem Sievert adalah ada dua buah ruangan yang dihubungkan sebuah katup. Spesimen diletakkan di salah satu ruangan yang dilengkapi dengan sistem pemanas listrik kemudian seluruh sistem divakumkan oleh suatu pembangkit vakum yang terdiri dari sebuah pompa *rotary* dan sebuah pompa *turbo molecular*. Sistem vakum bisa dicapai hingga tekanan 1×10^{-4} Pa. Setelah vakum tinggi tercapai, ruangan yang berisi spesimen dibiarkan vakum, sementara ruangan lainnya diisi gas hidrogen dengan tekanan bervariasi. Reaksi hidriding dilakukan pada suhu bervariasi 500 °C, 550 °C dan 600 °C, suhu di mana paduan Zr-H mengalami keseimbangan fasa. Tekanan dilepaskan ke dalam tabung spesimen secara bertahap dari tekanan vakum hingga 1000 mbar dalam waktu tertentu. Reaksi hidriding berlangsung ketika katup penghubung kedua ruangan tersebut dibuka. Perubahan tekanan di dalam sistem, suhu dan waktu hidriding dicatat dan digunakan sebagai dasar perhitungan kinetika interaksi Zr-4 dengan hidrogen [9].



Gambar 1. Sistem hydriding-dehydriding [9]

Kinetika

Data serapan tiap waktu setiap tingkatan suhu pada proses hidriding akan digunakan sebagai masukan awal pendekatan dengan menggunakan persamaan

Avrami dan turunannya seperti yang tertulis pada Persamaan (1) dan Persamaan (2) [10].

$$C_H = 1 - e^{Kt^n} \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$\ln \ln \left(\frac{1}{1 - C_H} \right) = \ln K + n \ln t \quad \dots\dots\dots (2)$$

Dimana:

C_H = Fraksi hidrogen pada waktu
 (t) = Tertentu selama proses hidriding
 K dan n = Konstanta yang akan ditentukan kemudian

Energi aktivasi yang menyertai proses absorpsi hidrogen ke kelongsong bahan bakar bisa dihitung dengan menggunakan Persamaan (3) yang merupakan rangkaian proses dari persamaan sebelumnya, sebagai berikut.

$$k = k_0 \exp \left(\frac{-E_A}{RT} \right) \quad \dots\dots\dots (3)$$

Dimana:

k = $K^{1/n}$
 k_0 = Tetapan
 E_A = Energi aktivasi (J/mol), diperoleh dari *intercept* antara harga k dan suhu.
 T = Suhu mutlak (Kelvin)
 R = Tetapan gas ideal (SI)

Tetapan k_0 , K dan n diperoleh berdasarkan perhitungan hasil percobaan.

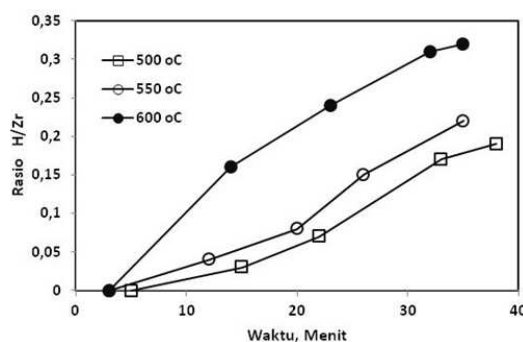
Observasi Fisik

Observasi fisik adalah pengamatan secara fisik dengan mata saja untuk melihat fisik kelongsong Zr-4 yang terjadi yang terjadi akibat proses hidriding. Observasi fisik dilakukan setelah proses hidriding berjalan selama 2 jam pada suhu 500 dan 600°C. Spesimen untuk observasi fisik dipilih pipa Zr-4 utuh dan Zr-4 yang ada bagian pengelasan dengan panjang masing-masing 35 mm.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Serapan Hidrogen

Hasil percobaan serapan hidrogen sebagai fungsi waktu untuk setiap kondisi suhu ditampilkan pada Gambar 2. Pada suhu 500 °C dengan waktu pengukuran sekitar 35 menit, rasio H/Zr mencapai 0,17 pada suhu 500 °C, H/Zr mencapai 0,22 pada suhu 550 °C, dan H/Zr mencapai 0,32 pada suhu 600 °C. Setelah waktu 35 menit tren grafik masih menunjukkan kenaikan rasio H/Zr dan hal ini dibahas lebih detail pada tinjauan kinetika. Dari data tampak bahwa kenaikan suhu mempercepat tumbuhnya fasa hidrida pada Zr-4.



Gambar 2. Serapan hidrogen versus waktu

Kinetika Hidriding

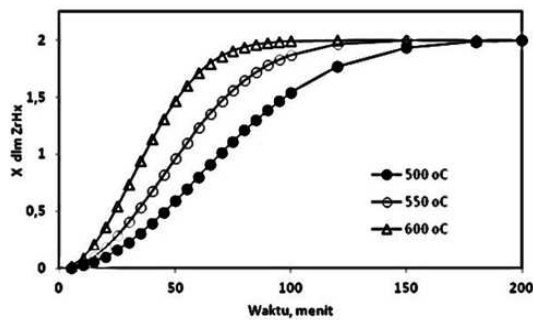
Data serapan hidrogen selama proses hidriding digunakan untuk memprediksi pembentukan senyawa Zr-hidrid seiring dengan waktu dengan persamaan Avrami yang ditunjukkan pada Persamaan (1) dan Persamaan (2). Perhatian terhadap hal ini sangat penting karena proses pembentukan hidrida sangat berpengaruh terhadap penurunan sifat mekanik Zr-4. Untuk mendapatkan perkiraan persen hidrida yang terbentuk, maka ditentukan harga konstanta K dan n dengan melakukan plot grafik yang dibentuk dari Persamaan (2) dan hasilnya ditampilkan pada Tabel 2. Dari Tabel 2 diperoleh gambaran bahwa harga n diperoleh rerata adalah 2, sehingga reaksi hidriding mengikuti reaksi order dua. Hasil perhitungan ini sesuai dengan analisis yang dilakukan oleh Parkinson [11].

Table 2. Hasil perhitungan nilai K dan n .

Suhu (°C)	K	n
500	1,1E-04	2,3
550	2,0E-04	1,9
600	4,1E-04	1,9

Nilai eksponen n juga menunjukkan jenis nukleasi yang terjadi dan menunjukkan dimensi penumbuhan kristal [12]. Nilai eksponen n pada suhu 500 °C menunjukkan bahwa fasa hidrida mulai terbentuk pada satu arah. Para peneliti biasa menyebut sebagai *platelet* [13], sedangkan pada suhu 550 °C dan 600 °C proses nukleasi menuju fasa selanjutnya sudah berlangsung secara homogen.

Nilai konstanta K dan n yang diperoleh digunakan untuk memprediksi pembentukan senyawa hidrida selama proses hidriding pada waktu t dan hasilnya ditampilkan pada grafik pembentukan senyawa Zr-hidrida pada Gambar 3. Dari Gambar 3 dan memperhatikan diagram fasa Zr-H terlihat bahwa pembentukan fasa hidrida Zr, baik fasa γ (ZrH), δ (ZrH_{1,5-1,7}) maupun ϵ (ZrH₂) terjadi setelah waktu hidriding yang bervariasi. Diagram fasa paduan Zr-H ditampilkan pada Gambar 4 menggambarkan langkah-langkah pembentukan senyawa zirkonium hidrida [14].



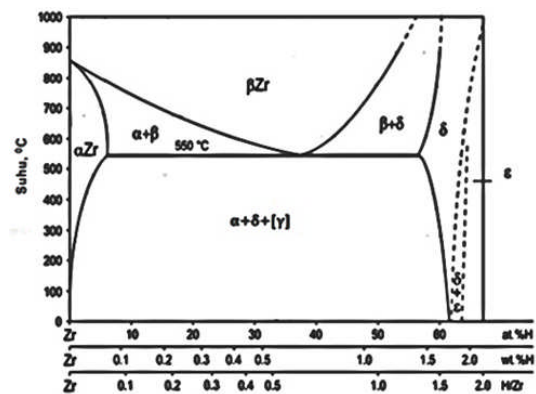
Gambar 3. Kinetika hidriding dengan persamaan Avrami

Pembentukan fasa-fasa hingga fasa ϵ (ZrH_2), seperti yang ditampilkan dalam Gambar 3 dengan rasio H/Zr adalah 2, merupakan awal perubahan sifat mekanik kelongsong Zr-4. Pembentukan fasa ϵ (ZrH_2) pada awal sifat mekanik mengalami ekspansi pada suhu hidriding 500 °C terjadi setelah waktu 180 menit. Pembentukan fasa ϵ (ZrH_2) pada awal perubahan sifat mekanik kelongsong mengalami ekspansi pada suhu hidriding 550 °C terjadi lebih cepat, yaitu setelah waktu 150 menit. Pembentukan fasa ϵ (ZrH_2) pada awal perubahan sifat mekanik kelongsong mengalami ekspansi pada suhu hidriding 600 °C terjadi semakin cepat, yaitu setelah waktu 100 menit.

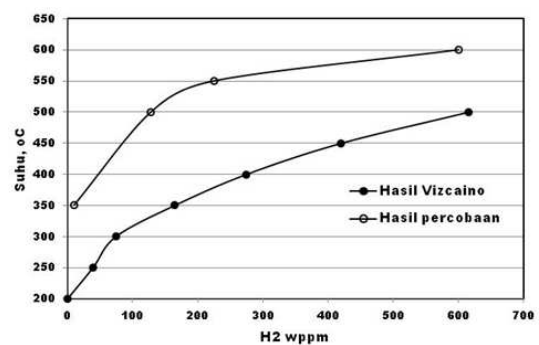
Dengan menggunakan Gambar 3 dan Persamaan (3) maka diperoleh energi aktivasi agar hydrogen bisa bereaksi dengan Zr-4, yaitu sebesar 35 kJ/mol, menurut kaidah entalpi versi Gibbs. Hal ini dikonfirmasi oleh peneliti lainnya, diantaranya dilakukan oleh Torres [15] yang menghitung energi aktivasi sebesar 24 kJ/mol dan Parkison [11] sebesar 26 kJ/mol. Hasil yang diperoleh lebih besar dibanding Torres maupun Parkinson, meskipun simpangannya kecil.

Untuk data pada suhu 500 °C, hasil ini sedikit lebih rendah dibanding dengan hasil yang diperoleh oleh Shen [16], namun lebih tinggi dibanding hasil yang diperoleh oleh Torres. Sekali lagi, terdapat perbedaan yang terjadi dari satu peneliti dan peneliti lainnya. Hal ini mudah dipahami karena alat yang digunakan dan komposisi variasi kimia Zr-4 yang digunakan berbeda, kemungkinan karena perbedaan kandungan Sn. Spesimen yang digunakan oleh Torres, sebagai contoh, kandungan Sn adalah 1,3%, Parkinson adalah 1,35%, sementara kandungan Sn dalam percobaan ini adalah 1,40%. Perbedaan komposisi Sn dalam Zr-4 diperkirakan ikut memengaruhi pembentukan senyawa Zr-H, meskipun yang paling utama adalah kandungan unsur Fe. Seperti diketahui, fungsi Sn adalah untuk memperbaiki sifat korosi logam Zr [17], tetapi dengan kadar Sn yang tinggi pada paduan akan mempercepat rusaknya lapisan oksida pada suhu tinggi, sehingga hydrogen akan lebih mudah bereaksi dengan Zr-4 [17,18].

Hasil kuantitatif serapan hydrogen oleh Zr-4 sebagai fungsi suhu ditampilkan pada Gambar 5 disandingkan bersama dengan hasil percobaan Viscaino [19]. Keterbatasan sarana penelitian, yaitu suhu



Gambar 4. Diagram fasa paduan zirkonium-hidrogen [14]



Gambar 5. Kandungan hydrogen versus suhu hingga 600 °C

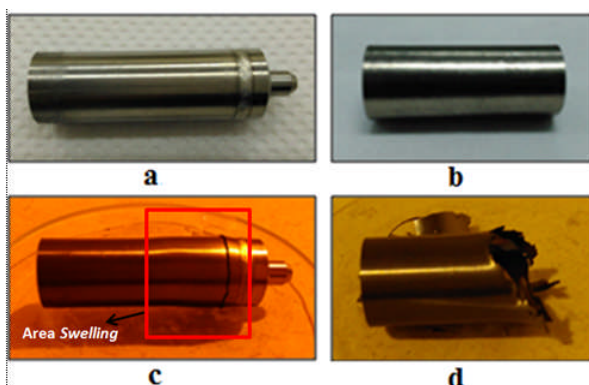
maksimum penelitian hanya dibatasi 600 °C, menyebabkan Penulis tidak bisa mengeksplorasi lebih jauh tentang pengaruh hydrogen terhadap Zr-4.

Dari Gambar 3, Gambar 4 dan Gambar 5 ditunjukkan bahwa kandungan hydrogen sebesar 200-300 ppm akan membentuk fasa β -Zr yang berada di fasa α -Zr dengan struktur sumbu kristal sama. Mani Krishna [20] mendapatkan bahwa ukuran batas butir dibuktikan berkisar antara 5-10 μm dengan perbandingan fraksi volume α/β sebesar 83:17 dan ukuran fasa hidrida sekitar 3-7 μm . Sementara itu Dupim [21] mendapatkan bahwa pada suhu 550°C, dalam waktu 260 menit terjadi pergeseran cepat dari fasa β -Zr menjadi fasa δ -Zr dengan komposisi $\text{ZrH}_{1,6}$. Hasil Dupim, penelitian-nya menggunakan alat DTA, jauh lebih lambat dibandingkan dengan data yang ditampilkan pada Gambar 3.

Observasi Fisik Kelongsong Zr-4 Akibat Hidriding

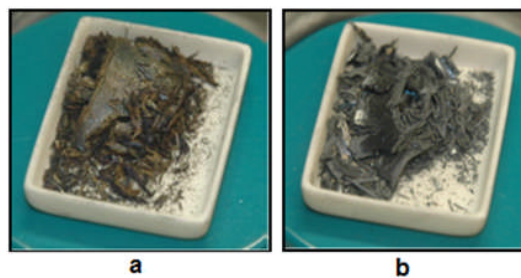
Hydrogen yang terserap memiliki dampak langsung terhadap sifat mekanik kelongsong Zr-4. Pada saat spesimen dipanaskan pada suhu 600°C selama 2 jam dalam suasana hydrogen, serapan hydrogen mencapai lebih dari 1300 ppm yang mengakibatkan penurunan sifat mekanik secara drastis. Gambar 6 memperlihatkan kerusakan akibat hydrogen yang membentuk fasa hidrida pada kelongsong Zr-4 pada

dua tingkatan suhu yang berbeda. Gambar 6(a) dan Gambar 6(b) menunjukkan spesimen kelongsong Zr-4 sebelum dihidriding. Pemanasan pada suhu 550 °C dengan paparan gas hidrogen pada tekanan 1000 mbar menyebabkan penggelembungan (*swelling*) pada dinding kelongsong dan terlepasnya sambungan tutup ujung kelongsong seperti yang terlihat pada Gambar 6(c). *Swelling* ini dipahami sebagai akumulasi kumpulan gelembung (*blister*) yang terbentuk akibat pembentukan fasa ϵ -ZrH₂. Pada spesimen yang dipanaskan pada suhu 600 °C dengan paparan hidrogen pada tekanan yang sama besar pada tingkat suhu 550 °C terjadi dampak yang lebih fatal. Seperti yang terlihat pada Gambar 6(d), kelongsong menggelembung hingga mencapai titik perpatahan yang menyebabkan kerusakan yang cukup serius pada kelongsong Zr-4. Pada kasus yang lebih ekstrim yaitu jumlah hidrogen sebesar 4850 ppm, diperoleh regangan maksimum kelongsong Zr-4 tinggal sekitar 1% dari nilai regangan pada spesimen tanpa hidrogen, seperti hasil analisis yang dipublikasikan oleh Menibus [22].



Gambar 6. Perubahan fisis sampel Zr-4 (a) dan (b) sebelum hidriding dan setelah proses hidriding pada suhu 550 °C (c) dan 600 °C (d) pada tekanan 1000 mbar, 2 jam.

Dari fakta hasil percobaan terlihat bahwa hasil eksperimen sejalan dengan grafik kinetika hidriding yang dibangun dengan menggunakan persamaan *Avrami* yang kita bahas sebelumnya. Waktu hidriding yang lebih lama meningkatkan serapan hidrogen dan fasa hidrida yang rapuh tercapai lebih cepat, sehingga pada rentang waktu pemanasan yang sama kerusakan lebih besar terjadi pada suhu yang lebih tinggi. Selain faktor suhu, kontrol aliran tekanan juga memegang peranan penting dalam menjelaskan mekanisme penurunan sifat mekanis kelongsong Zr-4. Pada percobaan yang dilakukan oleh Parkison [11], dengan suhu 310 °C dan 432 °C serta tekanan dibawah 100 mbar ternyata membutuhkan waktu selama 24 jam untuk membuat kelongsong Zr-4 hancur berbentuk seperti “*tobacco-like*”, seperti ditunjukkan pada Gambar 7 yang fenomena ini sama halnya dengan Gambar 6(d). Hal ini menunjukkan bahwa dengan suhu yang lebih rendah diperlukan waktu yang lebih lama untuk mencapai fasa hidrida rapuh, walaupun tekanan operasi pada penelitian Parkison yang cukup rendah juga



Gambar 7. Zr-4 setelah pemanasan pada suhu 310°C (a). dan 432°C (b). pada tekanan dibawah 100 mbar selama 24 jam, Parkinson [11].

mempengaruhi waktu capai pembentukan fasa hidrida. Dengan demikian, kinetika hidriding akan bersifat unik untuk nilai tekanan gas hidrogen yang terpaut cukup jauh antara penelitian satu dan yang lainnya. Jumlah hidrogen yang lebih tinggi akan menyebabkan jumlah hidrida terlarut menjadi lebih banyak pada matriks Zr-4. Interaksi antara fasa yang tidak homogen tersebut akan menyebabkan timbulnya tegangan yang kemudian akan menginisiasi terjadinya retakan selain retakan yang mungkin timbul karena rapuhnya fasa hidrida itu sendiri, seperti yang dilaporkan oleh Pschenichnikov [23]. Retakan awal ini akan secara cepat terhubung dengan retakan lainnya yang terletak pada hidrida yang berdekatan, sehingga akan timbul patahan yang akan menyebar dengan mudah pada kasus kelongsong yang menyerap hidrogen dalam jumlah yang lebih banyak. Selain itu, Zielinski [24] menunjukkan bahwa dengan memperhitungkan efek termal akibat pemanasan, akan memunculkan tegangan tarik pada sisi luar kelongsong. Tegangan tarik tersebut akan didukung oleh keberadaan tegangan tekan pada sisi dalam kelongsong yang akan menghasilkan *swelling* dan jika telah ada retakan awal maka akan menyebabkan cepatnya terjadinya retak propagasi dari sisi luar ke sisi dalam kelongsong.

KESIMPULAN

Analisis kinetika hidriding kelongsong Zr-4 pada suhu 500 °C hingga 600 °C dan tekanan 1000 mbar dengan formula *Avrami* menunjukkan bahwa reaksi hidriding menurut order dua dengan energi aktivasi 35 kJ/mol, sedikit lebih tinggi dibanding hasil peneliti lain. Waktu pembentukan fasa ϵ -ZrH yang menyebabkan kelongsong mengalami deradasi sifat mekanik semakin singkat seiring dengan kenaikan suhu. Dari hasil pengamatan visual, dengan waktu kontak hidrogen-kelongsong Zr-4 selama 2 jam, kelongsong mengalami penggelembungan pada suhu 550 °C dan mulai hancur saat suhu mencapai 600 °C.

DAFTAR ACUAN

- [1]. H.H. Hsu and L.W. Tsay. “Effect of Hydride Orientation on Fracture Toughness of Zircloy-4

- Cladding." *Journal of Nuclear Materials*, vol. 408, pp. 67-72, Jan. 2011.
- [2]. Udagawa Y, Yamaguchi M, Abe H, Sekimura N, Fuketa T. "Ab Initio Study on Plane Defects in Zirconium hydrogen Solid Solution and Zirconium Hydride." *Acta Materialia*, vol. 58, no. 11, pp. 3927-3938, 2010.
- [3]. Steinbrück, Martin. "Hydrogen Absorption by Zirconium Alloys at High Temperatures." *Journal of Nuclear Materials*, vol. 334, no. 1, pp. 58-64, 2004.
- [4]. H.H. Hsu and L.W. Tsay. "Fracture Properties of Hydrided Zircaloy-4 Cladding in Recrystallization and Stress-relief Anneal Conditions." *Journal of Nuclear Materials*, vol. 422, pp. 116-123, 2012.
- [5]. Z. Wang, U. Garbe, H. Li, et al. "Hydride Precipitation and Its Influence on Mechanical Properties of Notched and Unnotched Zircaloy-4 Plates." *Journal of Nuclear Materials*, vol. 436, no. 1-3, pp. 84-92, May 2013.
- [6]. T. Kubo, Y. Kobayashi, H. Uchikoshi. "Measurements of Delayed Hydride Cracking propagation rate in the radial direction of Zircaloy-2 Cladding Tubes." *Journal of Nuclear Materials*, vol. 427, no. 1-3, pp. 18-29, 2012.
- [7]. R. Sigit, H. Suwarno, B. Soegijono. "Characterization of Zircaloy-4 After Gaseous Hydriding at Temperature Range of 350-600°C." *Atom Indonesia*, vol. 42, no. 3, pp. 137-43, 2016.
- [8]. Daum, R.S., Y.S. Chu, and A.T. Motta. "Identification and Quantification of Hydride Phases in Zircaloy-4 Cladding Using Synchrotron X-Ray Diffraction." *Journal of Nuclear Materials*, vol. 392, no. 3, pp. 453-463, 2009.
- [9]. Suwarno, H. "Development of TRIGA Fuel Fabrication by Powder Technique." *Atom Indonesia*, vol. 40, no. 3, pp. 113-120, 2014.
- [10]. M. Songolzadeh, M. Soleimani, and M.T. Ravanchi. "Using modified Avrami Kinetic and Two Component Isotherm Equation for Modeling of CO₂/N₂ Adsorption Over a 13X Zeolite Bed." *Journal of National Gas Science Engineering*, vol. 27, no. 2, pp. 831-841, 2015.
- [11]. Parkison, A.J. "Hydride Production in Zircaloy-4 as a Function Time and Temperature." Thesis, Texas A&M University, Texas, May, 2008.
- [12]. Sinha, I., and R. K. Mandal. "Avrami Exponent Under Transient and Heterogeneous Nucleation Transformation Conditions." *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 357, no. 3, pp. 919-925, 2011.
- [13]. Blackmur, M.S, J D Robson, M Preuss, O Zanellato, R J Cernik, S Shi, F Ribeiro, and J Andrieux. "Zirconium Hydride Precipitation Kinetics in Zircaloy-4 Observed with Synchrotron X-Ray Diffraction." *Journal Of Nuclear Materials*, vol. 464, pp. 160-69, 2015.
- [14]. T.B. Massalski, H. Okamoto, P.R. Subramanian. "Binary Alloys Phase Diagrams. The American Society for Metals," 2nd, Ed., vol. 3, Ohio, USA, 1990, pp. 2070.
- [15]. E. Torres, J. Desquines, M.C. Baietto, and A. Ambard, "Adsorption and Diffusion of Hydrogen in Zircaloy-4." in Conference of Fontevraud 8: "Contribution of Materials Investigations and Operating Experience to LWRs' Safety, Performance and Reliability", 14-18 September, 2014, pp. 351-360.
- [16]. H.H. Shen, X.T. Zu, B. Chen, C. Q. Huang, and K. Sun. "Direct Observation of Hydrogenation and dehydrogenation of a zirconium alloy." *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 659, pp. 23-30, 2016.
- [17]. J. Wei, P. Frankel, E. Polatidis, M. Blat et al. "The Effect of Sn on Autoclave Corrosion Performance and Corrosion Mechanism in Zr-Sn-Nb Alloys." *Acta Materialia*, vol. 61, no. 11, pp. 4200-4214, 2013.
- [18]. H.H. Hsu, M.F. Chiang, Y.C. Chen. "The Influence of Hydride on Fracture Toughness of Recrystallized Zircaloy-4 Cladding." *Journal of Nuclear Material*, vol. 447, pp. 56-62, 2014.
- [19]. P. Vizcaino, P.B. Bozzano, A.V. Flores, P.B. Bozzano, A.D. Banchik, R.A. Vercaci, and R.O. Rios. "Hydrogen Solubility and Microstructural Changes in Zircaloy-4 due to Neutron Irradiation." *Journal of ASTM International*, vol. 8, no. 1, pp. 128-148, 2011.
- [20]. K.V. Mani Krishna, D. Srivastava, G.K. Dey, V. Hiwarkar, I. Samadjar and S. Banerjee. "Role of Grain/Phase Boundary Nature on The Formation of Hydrides in Zr-25%Nb Alloy." *Journal of Nuclear Materials*, vol. 414, no. 2, pp. 270-275. 2011.
- [21]. I.S. Dupim, J.M.L. Moreira, S.L. Silve, C.C.G e Silva, O.N. Jr, and R.G. Gomide. "Study on The Hydrogenation of Zircaloy-4." *Journal of Nuclear Materials*, vol. 427, no. 1-3, pp. 121-125, 2012.
- [22]. A.H. Menibus, Q. Auzoux, O. Dieye, P. Berger, S. Bosonnet, E. Foy V. McDonald, J. Besson and J. Crepin. "Formation and Characterization of Hydride Blister in Zircaloy-4 Cladding Tubes", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 449, no. 1-3, pp. 132-147, 2014.
- [23]. A. Pshenichnikov, J. Stuckert, and M. Walter, M. "Microstructure and Mechanical Properties of Zircaloy-4 Cladding Hydrogenated at Temperatures Typical for Loss-of-Coolant Accident (LOCA) Conditions." *Nuclear Engineering Design*, vol. 283, pp. 33-39, 2015.
- [24]. S. Sobieszczyk and S. Sobieszcky. "Hydrogen-Enhanced Degradation and Oxide Effects in Zirconium Alloys for Nuclear Applications." *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, no. 14, pp. 8619-8629, 2011.